

## BEST AVAILABLE COPY

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-089646

(43)Date of publication of application : 03.04.2001

(51)Int.Cl.

C08L 67/00

C08K 3/34

C08K 9/04

C08L 1/00

C08L 5/00

C08L 77/04

C08L 89/00

C08L 97/00

(21)Application number : 11-270647

(71)Applicant : TOYOTA CENTRAL RES & DEV LAB  
INC

(22)Date of filing : 24.09.1999

(72)Inventor : HASEGAWA NAOKI  
NAKANO MITSURU  
OKAMOTO HIROTAKA  
KATO MAKOTO  
USUKI ARIMITSU  
SATO NORIO

## (54) BIODEGRADABLE RESIN COMPOSITION

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a biodegradable resin composition which shows a sufficiently high rigidity and a high biodegradation rate.

SOLUTION: This biodegradable resin composition contains a biodegradable resin and a layered clay mineral which is organized by an organizing agent dispersed in the biodegradable resin.

Here, the organized layered clay mineral has an average particle size of  $\leq 1 \mu\text{m}$ .

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of  
rejection][Kind of final disposal of application other than  
the examiner's decision of rejection or  
application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision  
of rejection][Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テームト <sup>*</sup> (参考)
C 0 8 L 67/00		C 0 8 L 67/00	4 J 0 0 2
C 0 8 K 3/34		C 0 8 K 3/34	
9/04		9/04	
C 0 8 L 1/00		C 0 8 L 1/00	
5/00		5/00	
審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 7 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号	特願平11-270647	(71) 出願人	000003609 株式会社豊田中央研究所 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番地の1
(22) 出願日	平成11年 9 月24日 (1999. 9. 24)	(72) 発明者	長谷川 直樹 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番地の1 株式会社豊田中央研究所内
		(72) 発明者	中野 充 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番地の1 株式会社豊田中央研究所内
		(74) 代理人	100088155 弁理士 長谷川 芳樹 (外 3 名)
		最終頁に続く	

(54) 【発明の名称】 生分解性樹脂組成物

(57) 【要約】

【課題】 剛性が十分に高く、且つ生分解速度も速い生分解性樹脂組成物を提供すること。

【解決手段】 生分解性樹脂と、該生分解性樹脂中に分散されている有機化剤により有機化された層状粘土鉱物とを含み、前記有機化された層状粘土鉱物の平均粒径が1 μm以下であることを特徴とする生分解性樹脂組成物。

**【特許請求の範囲】**

**【請求項1】** 生分解性樹脂と、該生分解性樹脂中に分散されている有機化剤により有機化された層状粘土鉱物とを含み、前記有機化された層状粘土鉱物の平均粒径が $1\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする生分解性樹脂組成物。

**【請求項2】** 前記有機化剤が、有機オニウム化合物であることを特徴とする請求項1記載の生分解性樹脂組成物。

**【請求項3】** 前記生分解性樹脂が、脂肪族ポリエステル、ポリサッカライド、ポリペプチド及びリグニンからなる群より選ばれる少なくとも一つの樹脂若しくはこれらの誘導体であることを特徴とする請求項1または2記載の生分解性樹脂組成物。

**【発明の詳細な説明】****【0001】**

**【発明の属する技術分野】** 本発明は有機化された層状粘土鉱物を含む生分解性樹脂組成物に関する。

**【0002】**

**【従来の技術】** 脂肪族ポリエステル樹脂、脂肪族ポリエステル樹脂とポリアミド樹脂との共重合体等は生分解性を有する樹脂として知られている。これらの生分解性樹脂は微生物や酵素の働きにより分解されるが、その生分解速度は必ずしも早いものではない。したがって、澱粉等の天然樹脂を添加することにより生分解速度の向上を図ることが従来より行われてきた。しかしながら、澱粉等の天然樹脂の添加により樹脂の剛性や耐熱性が低下するため、適用可能な用途が限定されるという問題があった。

**【0003】** 生分解性樹脂に添加物を加えて性能向上を図るその他の方法として、例えば、特開平9-169893号公報に開示された方法が知られている。すなわち、生分解性を有するポリエステル樹脂に層状珪酸塩を添加することにより得られた樹脂組成物を用いる方法である。この公報によれば、層状珪酸塩の添加によって、生分解性という本来の性質を損なうことなくポリエステル樹脂の結晶化速度を速くすることができ、そのためにカッティング性や成形性等の向上が可能であるとされる。しかしながら、開示された樹脂組成物には剛性の向上や生分解速度の向上が施されておらず、上記した問題点を解消するには到っていない。

**【0004】**

**【発明が解決しようとする課題】** 本発明は、このような従来の技術的課題に鑑みてなされたものであり、剛性が十分に高く、且つ生分解速度も速い生分解性樹脂組成物を提供することを目的とする。

**【0005】**

**【課題を解決するための手段】** 本発明者は、上記の目的を達成すべく鋭意研究を重ねた結果、有機化剤により有機化された層状粘土鉱物を生分解性樹脂中に微分散す

ることにより、生分解性樹脂組成物の剛性を十分に高くすることができ、且つ生分解速度を速くすることも可能であることを見出し、本発明を完成させた。

**【0006】** すなわち、本発明の生分解性樹脂樹脂組成物は、生分解性樹脂と、該生分解性樹脂中に分散されている有機化剤により有機化された層状粘土鉱物とを含み、前記有機化された層状粘土鉱物の平均粒径が $1\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする。

**【0007】** 本発明においては、前記有機化剤が、有機オニウム化合物であることが好ましく、前記生分解性樹脂が、脂肪族ポリエステル、ポリサッカライド、ポリペプチド及びリグニンからなる群より選ばれる少なくとも一つの樹脂若しくはこれらの誘導体であることが好ましい。

**【0008】**

**【発明の実施の形態】** 以下、本発明の好適な実施形態についてさらに詳細に説明する。本発明の生分解性樹脂組成物は、生分解性樹脂と、該生分解性樹脂中に分散されている有機化剤により有機化された層状粘土鉱物とを含み、前記有機化された層状粘土鉱物の平均粒径が $1\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする組成物である。

**【0009】** 本発明において用いられる生分解性樹脂は、微生物や酵素等によって分解若しくは低分子量化されうる樹脂であればよく特に制限されないが、脂肪族ポリエステル、ポリサッカライド、ポリペプチド、リグニン又はこれらの誘導体であることが好ましい。これらの樹脂は、基本的に単独で生分解性樹脂として用いることができるものであるが、実用上、剛性及び／又は生分解速度が必ずしも十分でないため、本発明において用いる生分解性樹脂として好適である。

**【0010】** 脂肪族ポリエステルとしては、ポリエチレンサクシネート、ポリブチレンサクシネート、ポリヘキサメチレンサクシネート、ポリエチレンアジペート、ポリブチレンアジペート、ポリヘキサメチレンアジペート、ポリエチレンオキサレート、ポリブチレンオキサレート、ポリヘキサメチレンオキサレート、ポリエチレンセバケート、ポリブチレンセバケート等に代表される、少なくとも1種類のグリコールと少なくとも1種類の脂肪族ジカルボン酸との重縮合反応により得られるポリエステルが挙げられる。

**【0011】** 上記ポリエステルの原料としては、主成分のグリコールに3官能以上のポリオールを一部添加したものをを用いてもよく、また、主成分の脂肪族ジカルボン酸に芳香族ジカルボン酸及び／又は3官能以上のポリカルボン酸を一部添加したものをを用いてもよい。また、本発明に用いられる脂肪族ポリエステルは、上記したポリエステルの2種以上のブレンド物若しくは共重合体であってもよい。

**【0012】** 上記の脂肪族ポリエステルに加えて、ポリ乳酸やポリグリコール酸等のポリ(α-ヒドロキシ酸)

又はこれらの共重合体、ポリ(ε-カプロラクトン)、ポリ(β-プロキオラクトン)、ポリ(3-ヒドロキシバリレート)、ポリ(3-ヒドロキシブチレート)、ポリ(3-ヒドロキシカプレート)等の脂肪族ポリエステルも生分解性樹脂として用いることができる。

【0013】本発明の生分解性樹脂として用いられるポリサッカライドとしては、セルロース、ヘミセルロース、キチン、キトサン等が挙げられる。これらのポリサッカライドは、その分子の少なくとも一部が他の化学物質で置換されたり、分子の少なくとも一部に他の化学物質が付加したようなポリサッカライド誘導体であってもよい。セルロースの誘導体としては、例えば、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロースが挙げられる。

【0014】本発明の生分解性樹脂として用いられるポリペプチドとしては、例えば、コラーゲン及びコラーゲン誘導体が挙げられる。また、生分解性樹脂として用いられるリグニン、木化した植物体から得られるフェニルプロパン骨格の樹脂及びその誘導体であればよく、その単離方法には制限はない。

【0015】上記した脂肪族ポリエステル、ポリサッカライド、ポリペプチド及びリグニンは、単独で用いてもよく2種以上混合及び／又は反応させて用いてもよい。

【0016】本発明において用いられる層状粘土鉱物としては、例えば、カオリナイト、ハロサイト等のカオリナイト族；モンモリロナイト、バイデライト、サポナイト、ヘクトライト、マイカ等のスメクタイト族；パーミキュライト族等の層状粘土鉱物が挙げられる。層状粘土鉱物は天然物由来のものでも、天然物の処理品でも、膨潤性のフッ素化マイカのように合成品でもよい。上記の層状粘土鉱物は単独で用いてもよく2種類以上の混合物として用いてもよい。なお、イオン交換容量は50～200 meq/100 gであることが好ましい。

【0017】本発明において有機化とは、有機物を上記の層状粘土鉱物の表面及び／又は層間に物理的、化学的方法により吸着及び／又は結合させることを意味する。また、有機化剤とはこのような吸着及び／又は結合が可能な有機物をいい、溶媒中でイオンを生じる極性基を有する有機化合物が通常用いられる。

【0018】このような有機化剤としては、層状粘土鉱物に対する反応性及び生分解性樹脂中での層状粘土鉱物の分散性の観点から、有機アンモニウム化合物、有機ホスホニウム化合物、有機ピリジニウム化合物、有機スルホニウム化合物等の有機オニウム化合物を用いることが好ましい。なかでも、生じる有機オニウムイオンの反応性が良好なことから、有機アンモニウム化合物及び有機ホスホニウム化合物を用いることがより好ましい。

【0019】上記の有機オニウム化合物における孤立電子対を有する化合物(例えば、有機アンモニウム化合物においては窒素)に結合する有機基の炭素数は特に制限されないが、最長鎖の有機基の炭素数は6～24である

ことが好ましく、6～18であることがより好ましい。最長鎖の炭素数が6未満である場合は、層状粘土鉱物の有機化の効果が不十分になる傾向にあり、24を超える場合は生分解性樹脂中における層状粘土鉱物の分散が不十分になる傾向にある。また、上記の有機オニウム化合物における孤立電子対を有する化合物に結合する有機基の数は1以上、結合が許される最大数以下である。なお、この有機基はカルボキシル基、水酸基、チオール基、ニトリル基等を有していてもよい。

【0020】有機化剤として用いられる有機アンモニウム化合物としては、第一級、第二級、第三級及び第四級の有機アンモニウム化合物がいずれも使用できる。このようなアンモニウム化合物としては、ヘキシルアンモニウム化合物、オクチルアンモニウム化合物、デシルアンモニウム化合物、ドデシルアンモニウム化合物、テトラデシルアンモニウム化合物、ヘキサデシルアンモニウム化合物、オクタデシルアンモニウム化合物、ヘキシルトリメチルアンモニウム化合物、オクチルトリメチルアンモニウム化合物、デシルトリメチルアンモニウム化合物、ドデシルトリメチルアンモニウム化合物、テトラデシルトリメチルアンモニウム化合物、ヘキサデシルトリメチルアンモニウム化合物、オクタデシルトリメチルアンモニウム化合物、ドデシルジメチルアンモニウム化合物、ジオクタデシルアンモニウム化合物、ジオクタデシルジメチルアンモニウム化合物等が挙げられる。これらの有機アンモニウム化合物は単独で使用してもよいが2種類以上を組み合わせ使用してもよい。

【0021】層状粘土鉱物の有機化は、例えば、本出願人による特許第2627194号公報に開示されている方法により行うことができる。すなわち、層状粘土鉱物中の無機イオンを、上記の有機オニウム化合物から生じる有機オニウムイオン(例えば、有機アンモニウム化合物においては有機アンモニウムイオン)によりイオン交換することにより行うことができる。

【0022】有機アンモニウム化合物を用いる場合においては、例えば、次のような方法により有機化を行うことができる。すなわち、塊状の層状粘土鉱物を用いる場合は、まずこれをボールミル等により粉碎し粉体化する。次いで、ミキサー等を用いてこの粉体を水中に分散させ層状粘土鉱物の水分散物を得る。これとは別に、水に塩酸等の酸及び有機アミンを加え有機アンモニウム化合物の水溶液を調製する。この水溶液を上記層状粘土鉱物の水分散物に加え混合することにより、層状粘土鉱物中の無機イオンが有機アンモニウム化合物から生じた有機アンモニウムイオンによりイオン交換される。この混合物から水を除去することにより有機化された層状粘土鉱物を得ることができる。有機アンモニウム化合物や層状粘土鉱物の分散媒体としては、水以外にもメタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、エ



チレングリコール、これらの混合物及びこれらと水の混合物等も使用することが可能である

【0023】本発明の生分解性樹脂組成物は、上記の生分解性樹脂と有機化された層状粘土鉱物を含むものであるが、この生分解性樹脂組成物は、例えば、生分解性樹脂と有機化された層状粘土鉱物とを水や有機溶剤等の溶媒に分散若しくは溶解させた後、溶媒を除去することにより得ることができる。

【0024】また、生分解性樹脂と有機化された層状粘土鉱物とを混ぜ合わせた後、当該生分解性樹脂の融点若しくは軟化点以上に加熱することにより得ることもできる。加熱時には、せん断力を加え有機化された層状粘土鉱物を均一に分散させることが好ましく、加熱しつつせん断力を加える手段としては押出機を用いることが好ましい。この際、有機溶媒、オイル等を添加することができ、層状粘土鉱物の分散後あるいは分散過程において生分解性樹脂の架橋を行ってもよい。

【0025】上記の方法以外にも、例えば、生分解性樹脂を形成するモノマーに有機化された層状粘土鉱物を加え、有機化された層状粘土鉱物の存在下でモノマーの重合を行い、生分解性樹脂組成物を得ることが可能である。

【0026】生分解性樹脂と有機化された層状粘土鉱物の混合比は、前者100重量部に対して後者が好ましくは0.01~200重量部であり、より好ましくは0.1~100重量部であり、特に好ましくは0.1~30重量部である。層状粘土鉱物の重量部が0.01重量部未満である場合は、生分解性樹脂組成物の剛性および生分解速度の向上の程度が十分でなくなる傾向にあり、他方、200重量部を超す場合は、生分解性樹脂が連続層を形成できなくなる傾向にあり、生分解性樹脂組成物の剛性が低下する恐れがある。

【0027】なお、本発明においては、生分解性樹脂組成物の特性を大きく損なわない限りにおいて、顔料、熱安定剤、難燃剤、酸化防止剤、耐候剤、離型剤、可塑剤、強化剤等を加えることができる。

【0028】有機化された層状粘土鉱物は、上記のような方法により生分解性樹脂中に分散させることが可能であり、分散した層状粘土鉱物は1 $\mu$ m以下の平均粒径を有する。すなわち、層状粘土鉱物は有機化が施されているために生分解性樹脂とのなじみがよく、両者を混合する際に一方が凝集・分離することが防止され分散が効果的に行われるために、生分解性樹脂中に分散する層状粘土鉱物の平均粒径を上述のように1 $\mu$ m以下にすることが可能となる。

【0029】また、層状粘土鉱物は粘土鉱物が層状に積層した構造を有しているが、有機化が施されていることによりこの層の間への生分解性樹脂の挿入が可能となる。この結果、1 $\mu$ mよりもかなり小さい平均粒径（例えば、数~数百nmの平均粒径）で、層状粘土鉱物を生

分解性樹脂中に分散することが可能になる。一方で、有機化が施されていない層状粘土鉱物は生分解性樹脂とのなじみが悪く、また層間への生分解性樹脂の挿入が起こらないために、平均粒径1 $\mu$ m以下で層状粘土鉱物を分散させることは非常に困難である。

【0030】本発明においては、生分解性樹脂中に分散された、有機化された層状粘土鉱物は、0.01~1 $\mu$ mの平均粒径を有していることが好ましく、0.05~1 $\mu$ mの平均粒径を有していることがより好ましい。有機化された層状粘土鉱物の平均粒径が1 $\mu$ mを超える場合は、生分解性樹脂の剛性が十分に高くない傾向にある。

【0031】また、本発明においては、生分解性樹脂が、有機化された層状粘土鉱物の層間に挿入（インターカレーション）された状態にあることが好ましい。インターカレーションにより層状粘土鉱物と生分解性樹脂との界面が大きくなり、層状粘土鉱物による生分解性樹脂の補強効果がより向上する。

【0032】層状粘土鉱物の層間距離は、インターカレーションによりもとの層間距離よりも10オングストローム以上広がることが好ましく、20オングストローム以上広がることがより好ましい。層間距離は、30オングストローム以上広がることが更に好ましく、100オングストローム以上広がることが特に好ましい。また、層状粘土鉱物の層構造が消失する程度にまで層間距離が広がることが最も好ましい。層間距離が広がるにつれて、層状粘土鉱物により拘束される生分解性樹脂の割合が増加し、層状粘土鉱物による生分解性樹脂の補強効果が向上する。

【0033】以上で説明した本発明の生分解性樹脂組成物において特徴的なことは、生分解性樹脂に添加する層状粘土鉱物として、有機化された層状粘土鉱物を用いることである。また、生分解性樹脂中に分散された、有機化された層状粘土鉱物が1 $\mu$ m以下の平均粒径を有していることである。

【0034】有機化された層状粘土鉱物の平均粒径を1 $\mu$ m以下とすることにより、上記のように生分解性樹脂との界面（接触面）が増加し、これにより運動が拘束される生分解性樹脂の割合が増加し、生分解性樹脂組成物の剛性（曲げ弾性率、曲げ強度等）が向上すると考えられる。

【0035】また、有機化された層状粘土鉱物を用いることによって、層状粘土鉱物を用いない場合や有機化されていない層状粘土鉱物を用いる場合に比べて、生分解速度が速くなる。かかる効果を発揮するメカニズムについては、まだ必ずしも明らかではないが、層状粘土鉱物が有機化されていること及び層状粘土鉱物が微分散していること等が、分解菌の繁殖の場を増加させたり繁殖を容易にする等の効果をもたらすものと考えられる。

【0036】

【実施例】以下、本発明の好適な実施例についてさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0037】（実施例1）ナトリウムモンモリロナイト（クニミネ工業社製層状粘土鉱物、商品名：クニピアF）80gを80℃の水5000mlに分散させた。デシルアミン17.9g、濃塩酸4.2gを80℃の水2000mlに溶解し、この溶液を先のモンモリロナイト分散液に加えたところ沈殿物を得た。この沈殿物を濾過し80℃の水で3回洗浄し、凍結乾燥することによりデシルアンモニウムで有機化したモンモリロナイトを得た。以下、このモンモリロナイトをC10-Mtと呼ぶ。

【0038】C10-Mtとポリ乳酸（島津製作所製、ラクティ9000）を、二軸押出機（日本製鋼所製、TEX-30 $\alpha$ 11、L/D=45.5、スクリュ径30mm）のホッパーから投入し、160℃で溶融混練した。なお、ポリ乳酸とC10-Mtの混合比は、前者100重量部に対して後者3.9重量部であった。また、得られた組成物のモンモリロナイトの含有量は無機量で3重量%であった。次いで、この組成物を透過型電子顕微鏡で観察したところ、組成物中に分散したC10-Mtが100nmの平均粒径を有していることが確かめられた。

【0039】また、得られた組成物を、シート状に成形して試験片とし、60℃のコンポスト（堆肥）中に埋めて、組成物の重量が5%減、30%減、90%減になるまでの日数を調べた。更に、ASTM D-790に準じて150mm×10mm×6mmの試験片を作製し、変形速度1mm/分で荷重をかけ、曲げ弾性率及び曲げ強度を測定した。

【0040】（実施例2）デシルアミン17.9gに代えてデシルトリメチルアミン22.8gを用いた他は実施例1と同様にして、デシルトリメチルアンモニウムで有機化したモンモリロナイトを得た。以下、このモンモリロナイトをC10TM-Mtと呼ぶ。また、C10-Mtの代わりにC10TM-Mtを用いた他は実施例1と同様にして、二軸押出機でポリ乳酸との混練を行った。なお、ポリ乳酸とC10TM-Mtの混合比は、前者100重量部に対して後者4.0重量部であり、得られた組成物のモンモリロナイト含有量は無機量で3重量%であった。次いで、得られた組成物を透過型電子顕微鏡で観察したところ、組成物中に分散したC10TM-Mtが100nmの平均粒径を有していることが確かめられた。更に、実施例1と同様の試験片を作製して生分解性試験、曲げ弾性率試験及び曲げ強度試験を行った。

【0041】（実施例3）デシルアミン17.9gに代えてオクタデシルアミン30.7gを用いた他は実施例1と同様にして、オクタデシルアンモニウムで有機化し

たモンモリロナイトを得た。以下、このモンモリロナイトをC18-Mtと呼ぶ。また、C10-Mtの代わりにC18-Mtを用いた他は実施例1と同様にして、二軸押出機でポリ乳酸との混練を行った。なお、ポリ乳酸とC18-Mtの混合比は、前者100重量部に対して後者4.4重量部であり、得られた組成物のモンモリロナイト含有量は無機量で3重量%であった。次いで、得られた組成物を透過型電子顕微鏡で観察したところ、組成物中に分散したC18-Mtが100nmの平均粒径を有していることが確かめられた。更に、実施例1と同様の試験片を作製して生分解性試験、曲げ弾性率試験及び曲げ強度試験を行った。

【0042】（実施例4）デシルアミン17.9gに代えてオクタデシルトリメチルアミン35.6gを用いた他は実施例1と同様にして、オクタデシルトリメチルアンモニウムで有機化したモンモリロナイトを得た。以下、このモンモリロナイトをC18TM-Mtと呼ぶ。また、C10-Mtの代わりにC18TM-Mtを用いた他は実施例1と同様にして、二軸押出機でポリ乳酸との混練を行った。なお、ポリ乳酸とC18TM-Mtの混合比は、前者100重量部に対して後者4.5重量部であり、得られた組成物のモンモリロナイト含有量は無機量で3重量%であった。次いで、得られた組成物を透過型電子顕微鏡で観察したところ、組成物中に分散したC18TM-Mtが100nmの平均粒径を有していることが確かめられた。更に、実施例1と同様の試験片を作製して生分解性試験、曲げ弾性率試験及び曲げ強度試験を行った。

【0043】（実施例5）実施例3と同様にしてC18-Mtを作製した。次いで、セルロース誘導体（信越化学社製：セルロース誘導体90SH）19gをジメチルアセトアミド50mlに溶解させた溶液に、C18-Mt 450mgをジメチルアセトアミド10mlに分散させた分散液を添加し、これを混合した。次に、溶媒であるジメチルアセトアミドを除去することにより組成物を得た。この組成物を透過型電子顕微鏡で観察したところ、組成物中に分散したC18-Mtが120nmの平均粒径を有していることが確かめられた。また、実施例1と同様の試験片を作製して生分解性試験を行った。

【0044】（実施例6）実施例4と同様にしてC18TM-Mtを作製した。次いで、リグニン誘導体（日本製紙社製：リグニン誘導体パールレックスCP）10gをジメチルアセトアミド50mlに溶解させた溶液に、C18TM-Mt 450mgをジメチルアセトアミド10mlに分散させた分散液を添加し、これを混合した。次に、溶媒であるジメチルアセトアミドを除去することにより組成物を得た。この組成物を透過型電子顕微鏡で観察したところ、組成物中に分散したC18TM-Mtが120nmの平均粒径を有していることが確かめられた。また、実施例1と同様の試験片を作製して生分解性



試験を行った。

【0045】（比較例1）実施例1～4で用いたポリ乳酸と同一であり、有機化モンモリロナイトが未添加のポリ乳酸を用いて、実施例1と同様の試験片を作製して生分解性試験、曲げ弾性率試験及び曲げ強度試験を行った。

【0046】（比較例2）実施例1～4で用いたポリ乳酸と同一のポリ乳酸と、実施例1～4で用いたものと同じであり有機化されていないナトリウムモンモリロナイトとを用い、実施例1と同様にして二軸押出機にてこれらを混練し組成物を得た。なお、ポリ乳酸と有機化されていないナトリウムモンモリロナイトの混合比は、前者100重量部に対して後者3.1重量部であり、得られた組成物のモンモリロナイト含有量は無機量で3重量%であった。この組成物を透過型電子顕微鏡で観察したところ、組成物中に分散したナトリウムモンモリロナイトは数十～百 $\mu\text{m}$ の粒径（平均粒径：20 $\mu\text{m}$ ）を有していることがわかった。また、実施例1と同様の試験片を作製して生分解性試験、曲げ弾性率試験及び曲げ強度試験を行った。

【0047】（比較例3）実施例5で用いたセルロース誘導体と同一であり、有機化モンモリロナイトが未添加のセルロース誘導体を用いて、実施例1と同様の試験片

を作製して生分解性試験を行った。

【0048】（比較例4）実施例6で用いたリグニン誘導体と同一であり、有機化モンモリロナイトが未添加のリグニン誘導体を用いて、実施例1と同様の試験片を作製して生分解性試験を行った。

【0049】実施例1～6及び比較例1～4の生分解性試験の結果、曲げ弾性率及び曲げ強度試験の結果を表1に示す。合成高分子であるポリ乳酸に有機化された層状粘土鉱物（モンモリロナイト）を加えた場合（実施例1～4）は、層状粘土鉱物を加えない場合（比較例1）及び有機化されていない層状粘土鉱物を加えた場合（比較例2）に比較して、生分解速度が速く且つ剛性が高いことがわかった。また、天然高分子であるセルロース誘導体に有機化された層状粘土鉱物（モンモリロナイト）を加えた場合（実施例5）及び天然高分子であるリグニン誘導体に有機化された層状粘土鉱物（モンモリロナイト）を加えた場合（実施例6）は、層状粘土鉱物を用いない場合（比較例3及び4）に比較して、ポリ乳酸を用いた場合ほど顕著ではないものの、生分解速度が速くなることがわかった。

【0050】

【表1】

	生分解速度			剛性	
	重量5%減	重量30%減	重量90%減	曲げ弾性率	曲げ強度
実施例1	5日	8日	20日	4300MPa	95MPa
実施例2	5日	8日	21日	4330MPa	95MPa
実施例3	7日	11日	22日	4250MPa	93MPa
実施例4	7日	11日	21日	4270MPa	94MPa
実施例5	2日	4日	11日	—	—
実施例6	4日	6日	13日	—	—
比較例1	11日	18日	30日	3500MPa	90MPa
比較例2	11日	18日	28日	3650MPa	87MPa
比較例3	2日	4日	12日	—	—
比較例4	4日	6日	15日	—	—

【0051】

【発明の効果】以上説明したように、本発明によれば、

剛性が十分に高く、且つ生分解速度も速い生分解性樹脂組成物を提供することが可能となる。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7

識別記号

F I

テマコード（参考）

C O 8 L 77/04

C O 8 L 77/04

89/00

89/00

97/00

97/00

(72) 発明者 岡本 浩孝

愛知県愛知郡長久手町大字長湊字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内

(72) 発明者 臼杵 有光

愛知県愛知郡長久手町大字長湊字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内

(72) 発明者 加藤 誠

愛知県愛知郡長久手町大字長湊字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内

(72) 発明者 佐藤 紀夫

愛知県愛知郡長久手町大字長湊字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内

Fターム(参考) 4J002 AB021 AB031 AB051 AD001  
AH001 CF031 DJ036 DJ056  
EN137 EV297 EW177 FA086  
FB086 FD200



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**